

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 08-012600

(43)Date of publication of application : 16.01.1996

(51)Int.Cl. C07C 15/27  
C07C 43/20  
C07C 43/257  
C07C211/44  
C07C211/54  
C07C211/61  
C07C217/78  
C07C217/94  
C07C321/30  
C07D271/10  
C07D333/08  
C09K 11/06

(21)Application number : 07-125753

(71)Applicant : TDK CORP

(22)Date of filing : 26.04.1995

(72)Inventor : INOUE TETSUJI  
NAKATANI KENJI

(30)Priority

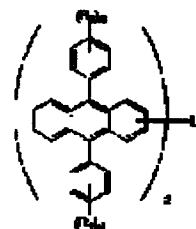
Priority number : 06110569 Priority date : 26.04.1994 Priority country : JP

## (54) PHENYLANTHRACENE DERIVATIVE AND ORGANIC EL ELEMENT

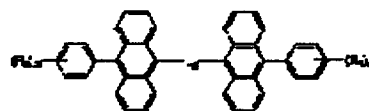
(57)Abstract:

PURPOSE: To provide the subject new phenylanthracene derivative having a specified structure, exhibiting a low crystallinity, capable of forming a thin film having a stable amorphous state and useful for, e.g. a light-emitting layer of an organic EL device capable of stably emitting high-brightness blue light.

CONSTITUTION: This is a new phenylanthracene derivative having a structure of the formula, A1LA2 (A1 and A2 are each monophenylanthryl or diphenylanthryl; L is a single bond or a divalent bonding group), represented by formula I (R1 and R2 are each an alkyl, a cyclo-alkyl, an aryl, an alkenyl, an alkoxy, an aryloxy, amino or a heterocyclic group; r1 and r2 are each 0 or 1 to 5; L1 is single bond, an arylene, etc.) or formula II (R3 and R4 are each same as R1; r3 and r4 are each 0 or 1 to 5; L2 is same as L1) and useful for, e.g. a light-emitting layer for emitting blue light in an organic EL device. This compound is synthesized by coupling 2-chloro-9,10-diphenylanthracene, etc., in the presence of bis(1,5-cyclooctadiene)nickel, 2,2'-bipyridyl, etc.



I



II

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

23.04.2002

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3816969

[Date of registration] 16.06.2006

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平8-12600

(43)公開日 平成8年(1996)1月16日

(51)Int.Cl. <sup>8</sup>	識別記号	序内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 7 C 15/27				
43/20	D	7419-4H		
43/257	Z	7419-4H		
	D	7419-4H		
211/44				

審査請求 未請求 請求項の数8 F D (全 42 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号	特願平7-125753	(71)出願人	000003067 ティーディーケイ株式会社 東京都中央区日本橋1丁目13番1号
(22)出願日	平成7年(1995)4月26日	(72)発明者	井上 鉄司 東京都中央区日本橋一丁目13番1号 ティーディーケイ株式会社内
(31)優先権主張番号	特願平6-110569	(72)発明者	中谷 賢司 東京都中央区日本橋一丁目13番1号 ティーディーケイ株式会社内
(32)優先日	平6(1994)4月26日	(74)代理人	弁理士 石井 陽一
(33)優先権主張国	日本 (J P)		

(54)【発明の名称】 フェニルアントラセン誘導体および有機E L素子

(57)【要約】

【構成】 下記式(Ⅰ)で表わされるフェニルアントラセン誘導体を、有機E L素子の有機化合物層、特に好ましくは青色発光用の発光層に用いる。

式(Ⅰ)  $A_1 - L - A_2$ 

[ $A_1$ 、 $A_2$ ；モノフェニルアントリルまたはジフェニルアントリル。L；単結合またはアリーレン基等の二価の連結基。]

【効果】 本発明の化合物は、結晶性が低く、安定なアモルファス状態の薄膜の形成を可能とする。従って、本発明の化合物を、特に、発光層に用いた場合、高輝度な青色発光が安定して得られ、信頼性に優れた有機E L素子が実現する。

1

【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記式(1)で表されるフェニルアントラセン誘導体。

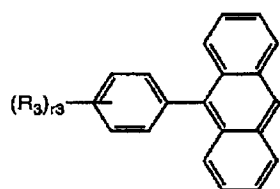
式(1)

$A_1 - L - A_2$

【式(1)において、 $A_1$  および  $A_2$  は、各々モノフェニルアントリル基またはジフェニルアントリル基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。 $L$  は単結合または二価の連結基を表す。】

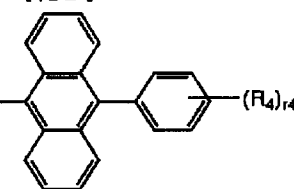
【請求項2】 下記化1または化2で表される請求項1のフェニルアントラセン誘導体。

【化1】



\*

【化2】



【化1において、 $R_1$  および  $R_2$  は、各々アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、アルケニル基、アルコキシ基、アリーロキシ基、アミノ基または複素環基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。 $r_1$  および  $r_2$  は、各々、0または1~5の整数を表す。 $r_1$  および  $r_2$  が、各々、2以上の整数であるとき、 $R_1$  同士および  $R_2$  同士は各々同一でも異なるものであってもよく、 $R_1$  同士または  $R_2$  同士は結合して環を形成してもよい。 $L_1$  は単結合またはアリーレン基を表し、アリーレン基はアルキレン基、 $-O-$ 、 $-S-$  または  $-NR-$  (ここで、 $R$  はアルキル基またはアリール基を表す。) が介在するものであってもよい。化2において、 $R_3$  および  $R_4$  は、各々アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、アルケニル基、アルコキシ基、アリーロキシ基、アミノ基または複素環基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。 $r_3$  および  $r_4$  は、各々、0または1~5の整数を表す。 $r_3$  および  $r_4$  が、各々、2以上の整数であるとき、 $R_3$  同士および  $R_4$  同士は各々同一でも異なるものであってもよく、 $R_3$  同士または  $R_4$  同士は結合して環を形成してもよい。 $L_2$  は単結合またはアリーレン基を表し、アリーレン基はアルキレン基、 $-O-$ 、 $-S-$  または  $-NR-$  (ここで、 $R$  はアルキル基またはアリール基を表す。) が介在するものであってもよい。】

【請求項3】 請求項1または2のフェニルアントラセン誘導体を含有する少なくとも1層の有機化合物層を有する有機EL素子。

【請求項4】 前記フェニルアントラセン誘導体を含有する有機化合物層が発光層である請求項3の有機EL素子。

【請求項5】 さらに、少なくとも1層の正孔注入層と、少なくとも1層の正孔輸送層と、少なくとも1層の

電子注入輸送層とを有する請求項4の有機EL素子。

【請求項6】 さらに、少なくとも1層の正孔注入層と、少なくとも1層の正孔輸送層と、少なくとも1層の電子輸送層と、少なくとも1層の電子注入層とを有する請求項4の有機EL素子。

【請求項7】 前記フェニルアントラセン誘導体を含有する有機化合物層が電子注入輸送層であり、さらに発光層を有する請求項3の有機EL素子。

【請求項8】 少なくとも1層の発光層を有し、この発光層が電子注入輸送性化合物と正孔注入輸送性化合物との混合層であって、この混合層が前記フェニルアントラセン誘導体を含有する請求項3の有機EL素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、有機EL(電界発光)素子に関し、詳しくは、有機化合物からなる積層構造薄膜に電界を印加して光を放出する素子に関する。

【0002】

【従来の技術】有機EL素子は、蛍光性有機化合物を含む薄膜を、陰極と陽極とで挟んだ構成を有し、前記薄膜に電子および正孔を注入して再結合させることにより励起子(エキシトン)を生成させ、このエキシトンが失活する際の光の放出(蛍光・燐光)を利用して発光する素子である。

【0003】有機EL素子の特徴は、10V程度の低電圧で100~10000cd/m<sup>2</sup>程度の高輝度の面発光が可能であり、また蛍光物質の種類を選択することにより青色から赤色までの発光が可能なことである。

【0004】一方、有機EL素子の問題点は、発光寿命が短く、保存耐久性、信頼性が低いことであり、この原因としては、

① 有機化合物の物理的変化

50

(結晶ドメインの成長などにより界面の不均一化が生じ、素子の電荷注入能の劣化・短絡・絶縁破壊の原因となる。特に分子量500以下の低分子化合物を用いると結晶粒の出現・成長が起こり、膜性が著しく低下する。また、ITO等の界面が荒れていても、顕著な結晶粒の出現・成長が起こり、発光効率の低下や、電流のリークを起こし、発光しなくなる。また、部分的非発光部であるダークスポットの原因にもなる。)

#### 【0005】② 陰極の酸化・剥離

(電子の注入を容易にするために仕事関数の小さな金属としてNa・Mg・Alなどを用いてきたが、これらの金属は大気中の水分や酸素と反応したり、有機層と陰極の剥離が起こり、電荷注入ができなくなる。特に高分子化合物などを用い、スピンコートなどで成膜した場合、成膜時の残留溶媒や分解物が電極の酸化反応を促進し、電極の剥離が起こり部分的な非発光部を生じさせる。)

#### 【0006】③ 発光効率が低く、発熱量が多いこと

(有機化合物中に電流を流すので、高い電界強度下には有機化合物を置かねばならず、発熱からは逃れられない。その熱のため、有機化合物の溶融・結晶化・熱分解などにより素子の劣化・破壊が起こる。)

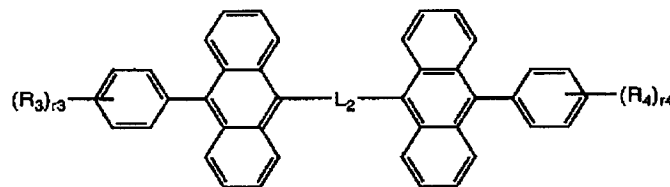
#### 【0007】④有機化合物層の光化学的変化・電気化学的変化

などが挙げられる。

【0008】特に、青色発光素子に関しては、信頼性が高く安定な素子を提供する青色発光材料は少ない。一般に、青色発光材料は結晶性が高い。例えば、ジフェニルアントラセンは高い蛍光量子収率を持つにも関わらず、結晶性が高く、この化合物を発光材料に用いて、素子を作製しても高輝度・高効率で信頼性の高い素子を提供できなかった〔C.Adachi, et al., Appli.Phys.Lett., 56, 799(1990)〕。

#### 【0009】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、特に物理的変化や光化学的変化、電気化学的変化の少ない光・電子機能材料として新規なフェニルアントラセン誘導\*



【0013】〔化3において、R<sub>1</sub> および R<sub>2</sub> は、各々アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、アルケニル基、アルコキシ基、アリーロキシ基、アミノ基または複素環基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。r<sub>1</sub> および r<sub>2</sub> は、各々、0 または 1～5 の整数を表す。r<sub>1</sub> および r<sub>2</sub> が、各々、2 以上の整数であるとき、R<sub>1</sub> 同士および R<sub>2</sub> 同士は各々同一でも異なるものであってもよく、R<sub>1</sub> 同士または R<sub>2</sub> 同士は結合し

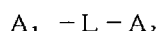
\* 体を提供し、このフェニルアントラセン誘導体を用い、信頼性および発光効率の高い種々の発光色を持った、特に青色の発光色を持った有機EL素子を実現することである。特に、分子量の大きな化合物を蒸着法で形成した有機薄膜を用い、素子の駆動時の駆動電圧上昇や輝度の低下、電流のリーク、部分的な非発光部の出現・成長を抑えた高信頼性の高輝度発光素子を実現することである。

#### 【0010】

10 【課題を解決するための手段】このような目的は、下記(1)～(8)の本発明により達成される。

(1) 下記式(1)で表されるフェニルアントラセン誘導体。

式(1)

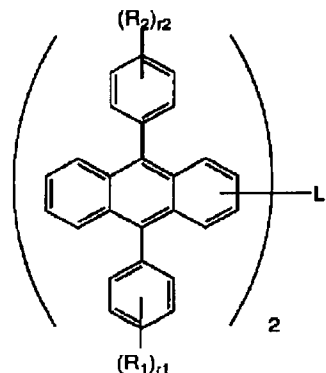


〔式(1)において、A<sub>1</sub> および A<sub>2</sub> は、各々モノフェニルアントリル基またはジフェニルアントリル基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。L は単結合または二価の連結基を表す。〕

20 (2) 下記化3または化4で表される上記(1)のフェニルアントラセン誘導体。

#### 【0011】

〔化3〕



#### 【0012】

〔化4〕

て環を形成してもよい。L<sub>1</sub> は単結合またはアリーレン基を表し、アリーレン基はアルキレン基、-O-、-S-または-NR-（ここで、Rはアルキル基またはアリール基を表す。）が介在するものであってもよい。化4において、R<sub>3</sub> および R<sub>4</sub> は、各々アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、アルケニル基、アルコキシ基、アリーロキシ基、アミノ基または複素環基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。r<sub>3</sub> およ

び $r_4$ は、各々、0または1～5の整数を表す。 $r_3$ および $r_4$ が、各々、2以上の整数であるとき、 $R_3$ 同士および $R_4$ 同士は各々同一でも異なるものであってもよく、 $R_3$ 同士または $R_4$ 同士は結合して環を形成してもよい。 $L_2$ は単結合またはアリーレン基を表し、アリーレン基はアルキレン基、 $-O-$ 、 $-S-$ または $-NR-$ （ここで、 $R$ はアルキル基またはアリール基を表す。）が介在するものであってもよい。）

（3）上記（1）または（2）のフェニルアントラセン誘導体を含有する少なくとも1層の有機化合物層を有する有機EL素子。

（4）前記フェニルアントラセン誘導体を含有する有機化合物層が発光層である上記（3）の有機EL素子。

（5）さらに、少なくとも1層の正孔注入層と、少なくとも1層の正孔輸送層と、少なくとも1層の電子注入輸送層とを有する上記（4）の有機EL素子。

（6）さらに、少なくとも1層の正孔注入層と、少なくとも1層の正孔輸送層と、少なくとも1層の電子輸送層と、少なくとも1層の電子注入層とを有する上記（4）の有機EL素子。

（7）前記フェニルアントラセン誘導体を含有する有機化合物層が電子注入輸送層であり、さらに発光層を有する上記（3）の有機EL素子。

（8）少なくとも1層の発光層を有し、この発光層が電子注入輸送性化合物と正孔注入輸送性化合物との混合層であって、この混合層が前記フェニルアントラセン誘導体を含有する上記（3）の有機EL素子。

【0014】

【作用】本発明の有機EL素子は上記式（1）、好ましくは上記化3、化4に示される化合物を発光層に用いるため、 $10000\text{cdm}^{-2}$ 程度、あるいはそれ以上の高輝度が安定して得られる。また、耐熱性・耐久性が高く、素子電流密度も $1000\text{mAcm}^{-2}$ 程度でも安定した駆動が可能である。

【0015】上記化合物の蒸着膜は安定なアモルファス状態なので、薄膜の膜物性が良好となりムラがなく均一な発光が可能である。また、大気下で一年以上安定であり結晶化を起こさない。

【0016】また、クロロホルム溶液でスピンコートしても安定なアモルファス状態の薄膜を形成することが可能である。

【0017】また、本発明の有機EL素子は、低駆動電圧で効率よく発光する。

【0018】なお、本発明の有機EL素子の発光極大波長は、 $400\sim 700\text{nm}$ 程度である。

【0019】

【具体的構成】以下、本発明の具体的構成について詳細に説明する。

【0020】本発明のフェニルアントラセン誘導体は式（1）で示されるものである。式（1）について説明す

ると、 $A_1$ 、および $A_2$ は、各々モノフェニルアントリル基またはジフェニルアントリル基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。

【0021】 $A_1$ 、 $A_2$ で表されるモノフェニルアントリル基またはジフェニルアントリル基は、無置換でも置換基を有するものであってもよく、置換基を有する場合の置換基としては、アルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリーロキシ基、アミノ基等が挙げられ、これらの置換基はさらに置換されていてもよい。これらの置換基については後述する。また、このような置換基の置換位置は特に限定されないが、アントラセン環ではなく、アントラセン環に結合したフェニル基であることが好ましい。

【0022】また、アントラセン環におけるフェニル基の結合位置はアントラセン環の9位、10位であることが好ましい。

【0023】式（1）において、 $L$ は単結合または二価の基を表すが、 $L$ で表される二価の基としてはアルキレン基等が介在してもよいアリーレン基が好ましい。このようなアリーレン基については後述する。

【0024】式（1）で示されるフェニルアントラセン誘導体のなかでも、化3、化4で示されるものが好ましい。化3について説明すると、化3において、 $R_1$ および $R_2$ は、各々アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリーロキシ基、アミノ基または複素環基を表す。

【0025】 $R_1$ 、 $R_2$ で表されるアルキル基としては、直鎖状でも分岐を有するものであってもよく、炭素数1～10、さらには1～4の置換もしくは無置換のアルキル基が好ましく、具体的にはメチル基、エチル基、（ $n-$ 、 $i-$ ）プロピル基、（ $n-$ 、 $i-$ 、 $s-$ 、 $t-$ ）ブチル基等が挙げられる。

【0026】 $R_1$ 、 $R_2$ で表されるシクロアルキル基としては、シクロヘキシル基、シクロペンチル基等が挙げられる。

【0027】 $R_1$ 、 $R_2$ で表されるアリール基としては、炭素数6～20のものが好ましく、さらにはフェニル基、トリル基等の置換基を有するものであってもよい。具体的には、フェニル基、（ $o-$ 、 $m-$ 、 $p-$ ）トリル基、ビレニル基、ナフチル基、アントリル基、ピフェニル基、フェニルアントリル基、トリルアントリル基等が挙げられる。

【0028】 $R_1$ 、 $R_2$ で表されるアルケニル基としては、総炭素数6～50のものが好ましく、無置換のものであってもよいが置換基を有するものであってもよく、置換基を有する方が好ましい。このときの置換基としては、フェニル基等のアリール基が好ましい。具体的には、トリフェニルビニル基、トリトリルビニル基、トリビフェニルビニル基等が挙げられる。

10

20

30

40

50

【0029】 $R_1$ 、 $R_2$ で表されるアルコキシ基としては、アルキル基部分の炭素数が1~6のものが好ましく、具体的にはメトキシ基、エトキシ基等が挙げられる。アルコキシ基は、さらに置換されていてもよい。

【0030】 $R_1$ 、 $R_2$ で表されるアリーロキシ基としては、フェノキシ基等が挙げられる。

【0031】 $R_1$ 、 $R_2$ で表されるアミノ基は、無置換でも置換基を有するものであってもよいが、置換基を有することが好ましく、この場合の置換基としてはアルキル基（メチル基、エチル基等）、アリール基（フェニル基等）などが挙げられる。具体的にはジエチルアミノ基、ジフェニルアミノ基、ジ（m-トリル）アミノ基等が挙げられる。

【0032】 $R_1$ 、 $R_2$ で表される複素環基としては、ピピリジル基、ピリミジル基、キノリル基、ピリジル基、チエニル基、フリル基、オキサジアゾイル基等が挙げられる。これらは、メチル基、フェニル基等の置換基を有していてもよい。

【0033】化3において、 $r_1$ および $r_2$ は、各々、0または1~5の整数を表し、特に、0または1であることが好ましい。 $r_1$ および $r_2$ が、各々、1~5の整数、特に1または2であるとき、 $R_1$ および $R_2$ は、各々、アルキル基、アリール基、アルケニル基、アルコキシ基、アリーロキシ基、アミノ基であることが好ましい。

【0034】化3において、 $R_1$ と $R_2$ とは同一でも異なるものであってもよく、 $R_1$ と $R_2$ とが各々複数存在するとき、 $R_1$ 同士、 $R_2$ 同士は各々同一でも異なるものであってもよく、 $R_1$ 同士あるいは $R_2$ 同士は結合してベンゼン環等の環を形成してもよく、環を形成する場合も好ましい。

【0035】化3において、 $L_1$ は単結合またはアリーレン基を表す。 $L_1$ で表されるアリーレン基としては、無置換であることが好ましく、具体的にはフェニレン基、ビフェニレン基、アントリレン基等の通常のアリーレン基の他、2個ないしそれ以上のアリーレン基が直接連結したものが挙げられる。 $L_1$ としては、単結合、p-フェニレン基、4,4'-ビフェニレン基等が好ましい。

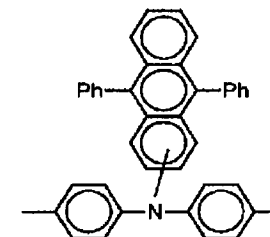
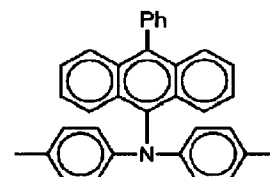
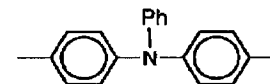
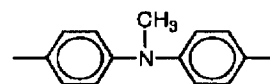
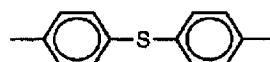
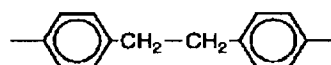
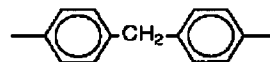
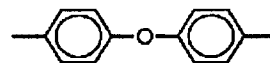
【0036】また、 $L_1$ で表されるアリーレン基は、2個ないしそれ以上のアリーレン基がアルキレン基、-O-、-S-または-NR-が介在して連結するものであってもよい。ここで、Rはアルキル基またはアリール基を表す。アルキル基としてはメチル基、エチル基等が挙げられ、アリール基としてはフェニル基等が挙げられる。なかでも、アリール基が好ましく、上記のフェニル基のほか、 $A_1$ 、 $A_2$ であってもよく、さらにはフェニル基に $A_1$ または $A_2$ が置換したものであってもよい。

【0037】また、アルキレン基としてはメチレン基、エチレン基等がこの好ましい。このようなアリーレン基

の具体例を以下に示す。

【0038】

【化5】



【0039】次に、化4について説明すると、化4において、 $R_1$ および $R_2$ は化3における $R_1$ および $R_2$ と、また $r_3$ および $r_4$ は化3における $r_1$ および $r_2$ と、さらに $L_2$ は化3における $L_1$ とそれぞれ同義であり、好ましいものも同様である。

【0040】化4において、 $R_3$ と $R_4$ とは同一でも異なるものであってもよく、 $R_3$ と $R_4$ が各々複数存在するとき、 $R_3$ 同士、 $R_4$ 同士は、各々同一でも異なるものであってもよく、 $R_3$ 同士あるいは $R_4$ 同士は結合してベンゼン環等の環を形成してもよく、環を形成する場合も好ましい。

【0041】化3、化4で表される化合物を以下に例示するが、本発明はこれらに限定されるものではない。なお、化6、化8、化10、化12、化14、化16、化

18では一般式を示し、化7、化9、化11、化13、化15、化17、化19、化20で、各々対応する具体例を $R_{11} \sim R_{15}$ 、 $R_{21} \sim R_{25}$ 、あるいは $R_{31} \sim R_{35}$ 、 $R_{41} \sim R_{45}$ の組合せで示している。

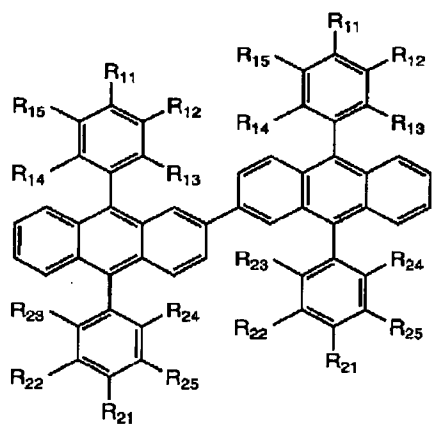
【0043】

【化7】

【0042】

【化6】


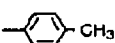
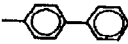
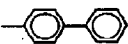
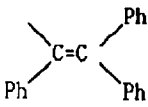
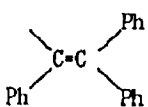
I



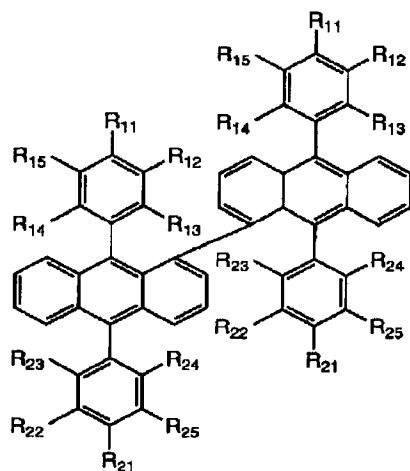
10

20



化合物 No.	11					12				
	R <sub>11</sub>	R <sub>12</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>21</sub>	R <sub>22</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>
I-1	H	H	H	H	H	H	H	H	H	H
I-2	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H
I-3	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H
I-4	OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H	OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H
I-5	OPh	H	H	H	H	OPh	H	H	H	H
I-6	N(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	H	H	N(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	H	H
I-7	N(Ph) <sub>2</sub>	H	H	H	H	N(Ph) <sub>2</sub>	H	H	H	H
I-8	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H	H	H
I-9		H	H	H	H		H	H	H	H
I-10	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H
I-11	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H
I-12	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H
I-13	H	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>
I-14	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
I-15	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H	H	H	H	H	H
I-16		H	H	H	H		H	H	H	H
I-17	H	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H	H
I-18	H	H	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H
I-19		H	H	H	H		H	H	H	H
I-20	n-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H	n-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H

II

\* [0045]  
[化9]

10

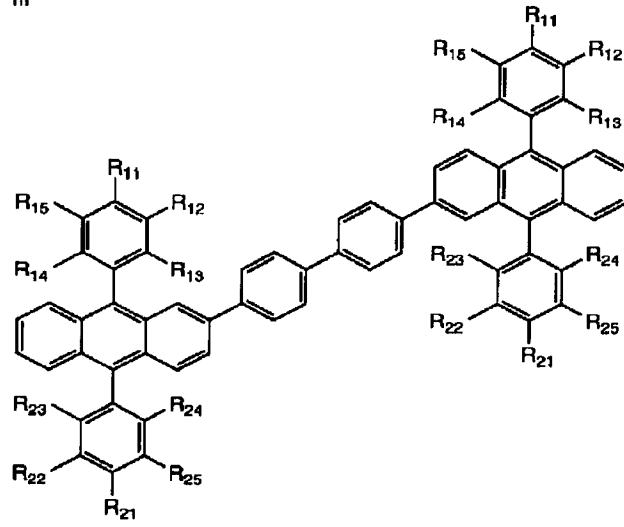
\*

化合物 No.	R <sub>11</sub>	R <sub>12</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>21</sub>	R <sub>22</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>
II-1	H	H	H	H	H	H	H	H	H	H
II-2	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H
II-3	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H
II-4	OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H	OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H
II-5	OPh	H	H	H	H	OPh	H	H	H	H
II-6	N(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	H	H	N(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	H	H
II-7	N(Ph) <sub>2</sub>	H	H	H	H	N(Ph) <sub>2</sub>	H	H	H	H
II-8	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H	H	H
II-9		H	H	H	H		H	H	H	H
II-10	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H
II-11	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H
II-12	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H
II-13	H	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>
II-14	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
II-15	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H	H	H	H	H	H
II-16		H	H	H	H		H	H	H	H
II-17	H	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H	H
II-18	H	H	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H

【 0 0 4 6 】



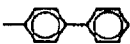
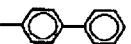




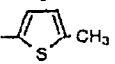
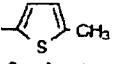
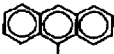
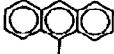
\* \* 【化10】

111



【 0 0 4 7 】

【化 1 1】

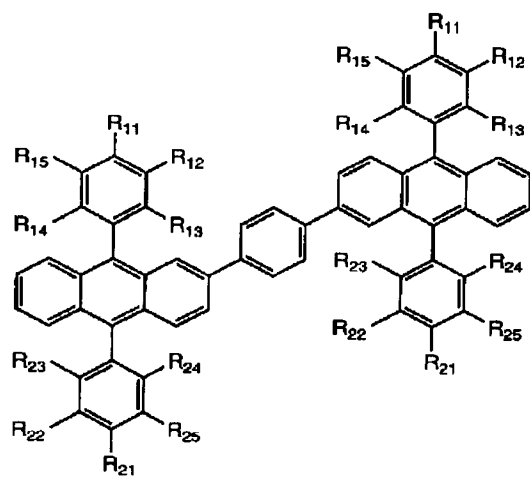
17						18				
化合物 No.	R <sub>11</sub>	R <sub>12</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>21</sub>	R <sub>22</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>
III-1	H	H	H	H	H	H	H	H	H	H
III-2	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H
III-3	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H
III-4	OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H	OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H
III-5	OPh	H	H	H	H	OPh	H	H	H	H
III-6	N(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	H	H	N(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	H	H
III-7	N(Ph) <sub>2</sub>	H	H	H	H	N(Ph) <sub>2</sub>	H	H	H	H
III-8	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H	H	H
III-9		H	H	H	H		H	H	H	H
III-10	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H
III-11	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H
III-12	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H
III-13	H	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>
III-14	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
III-15	H	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H	H
III-16	H	H	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H
III-17		H	H	H	H		H	H	H	H
III-18	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H	H	H	H	H	H
III-19		H	H	H	H		H	H	H	H
III-20		H	H	H	H		H	H	H	H
III-21		H	H	H	H		H	H	H	H
III-22		H	H	H	H		H	H	H	H

【0048】



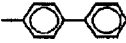
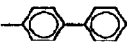




【化12】

IV

19

【0049】  
【化13】

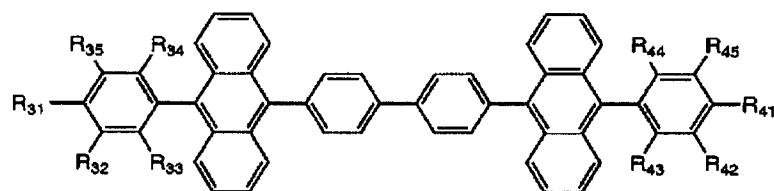
10

21						22				
化合物 No.	R <sub>11</sub>	R <sub>12</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>21</sub>	R <sub>22</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>
IV-1	H	H	H	H	H	H	H	H	H	H
IV-2	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H
IV-3	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H
IV-4	OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H	OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H
IV-5	OPh	H	H	H	H	OPh	H	H	H	H
IV-6	N(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	H	H	N(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	H	H
IV-7	N(Ph) <sub>2</sub>	H	H	H	H	N(Ph) <sub>2</sub>	H	H	H	H
IV-8	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H	H	H
IV-9		H	H	H	H		H	H	H	H
IV-10	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H
IV-11	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H
IV-12	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H
IV-13	H	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>
IV-14	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
IV-15	H	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H	H
IV-16	H	H	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H
IV-17		H	H	H	H		H	H	H	H
IV-18	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H	H	H	H	H	H
IV-19		H	H	H	H		H	H	H	H
IV-20		H	H	H	H		H	H	H	H

【0050】

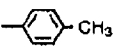

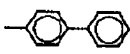
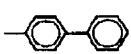
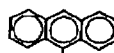





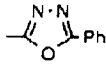
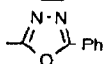
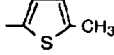
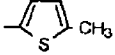
\* \* 【化14】

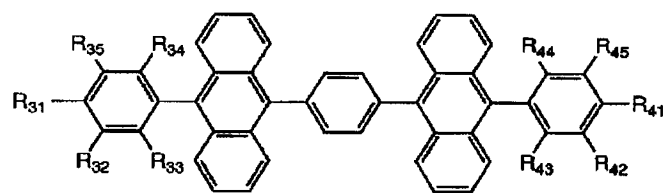
v



【0051】

【化15】

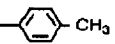
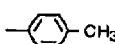
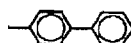
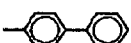
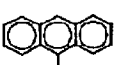
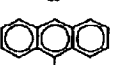


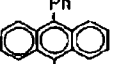
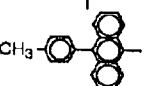




化合物 No.	R <sub>31</sub>	R <sub>32</sub>	R <sub>33</sub>	R <sub>34</sub>	R <sub>35</sub>	R <sub>41</sub>	R <sub>42</sub>	R <sub>43</sub>	R <sub>44</sub>	R <sub>45</sub>
V-1	H	H	H	H	H	H	H	H	H	H
V-2	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H
V-3	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H
V-4	OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H	OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H
V-5	OPh	H	H	H	H	OPh	H	H	H	H
V-6	N(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	H	H	N(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	H	H
V-7	N(Ph) <sub>2</sub>	H	H	H	H	N(Ph) <sub>2</sub>	H	H	H	H
V-8	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H	H	H
V-9		H	H	H	H		H	H	H	H
V-10	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H
V-11	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H
V-12	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H
V-13	H	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>
V-14	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
V-15	H	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H	H
V-16	H	H	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H
V-17		H	H	H	H		H	H	H	H
V-18	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H
V-19		H	H	H	H		H	H	H	H
V-20		H	H	H	H		H	H	H	H
V-21		H	H	H	H		H	H	H	H
V-22		H	H	H	H		H	H	H	H
V-23		H	H	H	H		H	H	H	H

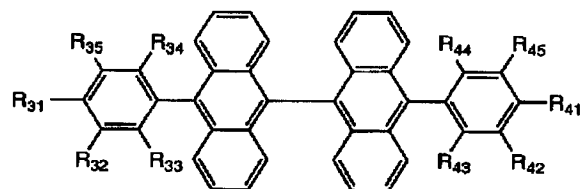


【0053】

【化17】



化合物 No.	R <sub>31</sub>	R <sub>32</sub>	R <sub>33</sub>	R <sub>34</sub>	R <sub>35</sub>	R <sub>41</sub>	R <sub>42</sub>	R <sub>43</sub>	R <sub>44</sub>	R <sub>45</sub>
VI-1	H	H	H	H	H	H	H	H	H	H
VI-2	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H
VI-3	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H
VI-4	OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H	OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H
VI-5	OPh	H	H	H	H	OPh	H	H	H	H
VI-6	N(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	H	H	N(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	H	H
VI-7	N(Ph) <sub>2</sub>	H	H	H	H	N(Ph) <sub>2</sub>	H	H	H	H
VI-8	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H	H	H
VI-9		H	H	H	H		H	H	H	H
VI-10	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H
VI-11	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H
VI-12	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H
VI-13	H	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>
VI-14	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
VI-15	H	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H	H
VI-16	H	H	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H
VI-17		H	H	H	H		H	H	H	H
VI-18	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H	H	H	H	H	H
VI-19		H	H	H	H		H	H	H	H
VI-20		H	H	H	H		H	H	H	H
VI-21		H	H	H	H	H	H	H	H	H
VI-22		H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H
VI-23		H	H	H	H		H	H	H	H
VI-24		H	H	H	H		H	H	H	H



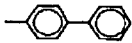
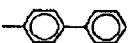
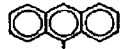



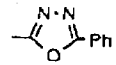
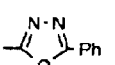
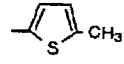
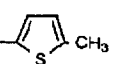
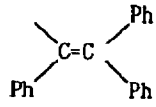
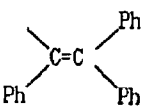
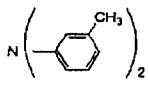
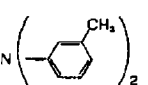
【0055】

\* \* 【化19】

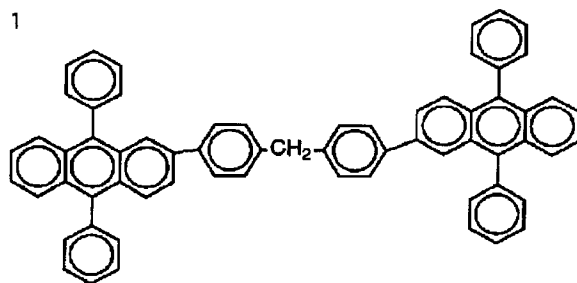
化合物 No.	R <sub>31</sub>	R <sub>32</sub>	R <sub>33</sub>	R <sub>34</sub>	R <sub>35</sub>	R <sub>41</sub>	R <sub>42</sub>	R <sub>43</sub>	R <sub>44</sub>	R <sub>45</sub>
VII-1	H	H	H	H	H	H	H	H	H	H
VII-2	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H
VII-3	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H
VII-4	OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H	OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H
VII-5	OPh	H	H	H	H	OPh	H	H	H	H
VII-6	N(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	H	H	N(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	H	H
VII-7	N(Ph) <sub>2</sub>	H	H	H	H	N(Ph) <sub>2</sub>	H	H	H	H
VII-8	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H	H	H
VII-9		H	H	H	H		H	H	H	H
VII-10	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H
VII-11	H	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>
VII-12	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H
VII-13	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H
VII-14	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>

【0056】

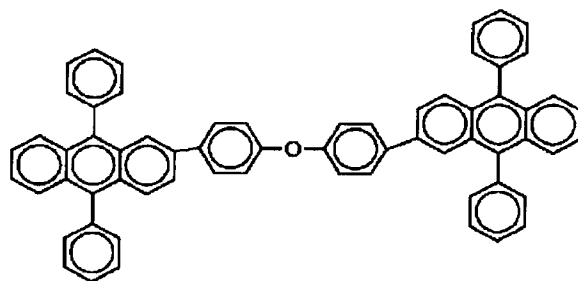
【化20】

化合物 No.	R <sub>31</sub>	R <sub>32</sub>	R <sub>33</sub>	R <sub>34</sub>	R <sub>35</sub>	R <sub>41</sub>	R <sub>42</sub>	R <sub>43</sub>	R <sub>44</sub>	R <sub>45</sub>
VII-15	H	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H	H
VII-16	H	H	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H
VII-17		H	H	H	H		H	H	H	H
VII-18	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H	H	H	H	H	H
VII-19		H	H	H	H		H	H	H	H
VII-20		H	H	H	H		H	H	H	H
VII-21		H	H	H	H		H	H	H	H
VII-22		H	H	H	H		H	H	H	H
VII-23		H	H	H	H		H	H	H	H
VII-24	n-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H	n-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H
VII-25	H	H	OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H	OCH <sub>3</sub>	H	H
VII-26	H	R <sub>32</sub> とR <sub>33</sub> とで 縮合の環			H	H	H	R <sub>42</sub> とR <sub>43</sub> とで 縮合の環		
VII-27		H	H	H	H		H	H	H	H

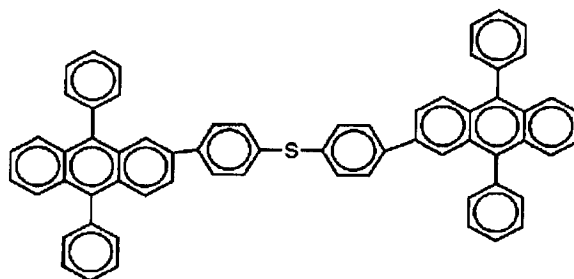
VIII - 1



VIII - 2



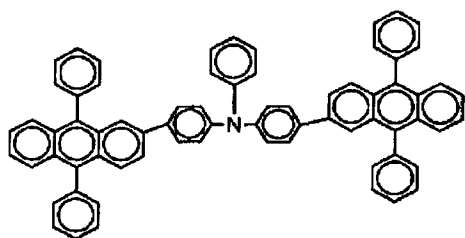
VIII - 3



【0058】

【化22】

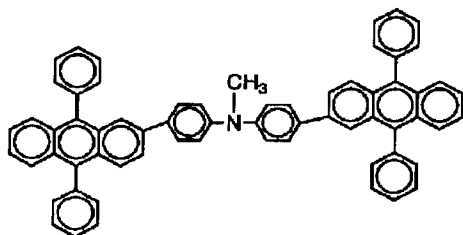
VIII - 4



35

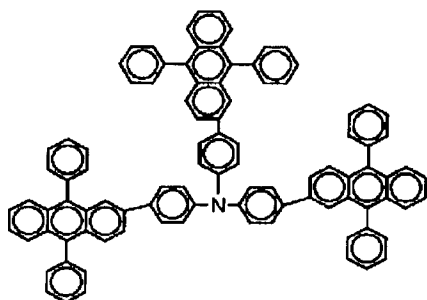
【0059】  
【化23】

VIII - 5



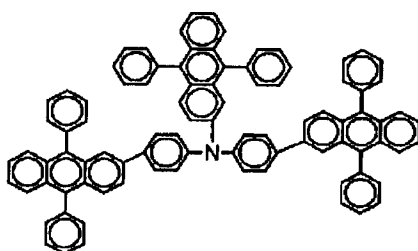
10

VIII - 6



20

VIII - 7

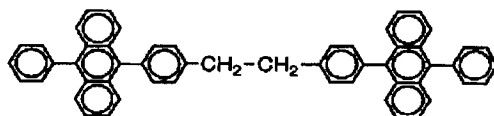


30

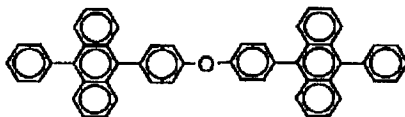
37

38

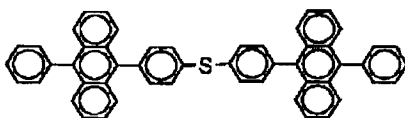
IX - 1



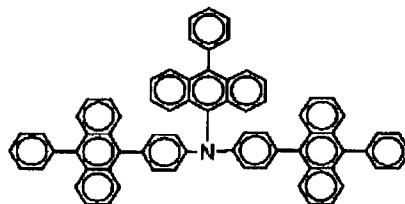
IX - 2



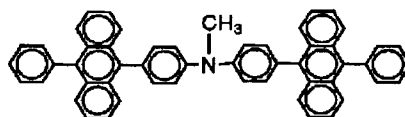
IX - 3



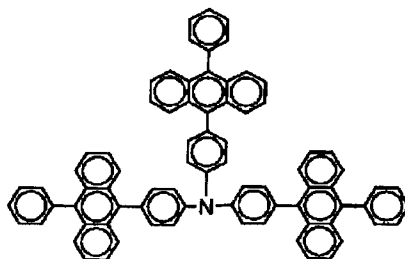
IX - 4



IX - 5



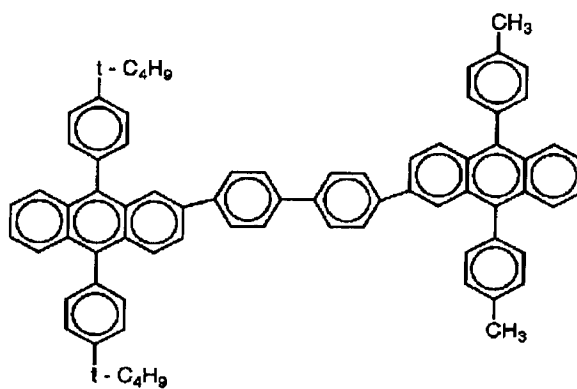
IX - 6



【0060】

\* \* 【化24】

X - 1



【0061】本発明のフェニルアントラセン誘導体（以下、「本発明の化合物」ともいう。）は、（1）ハロゲン化ジフェニルアントラセン化合物を、Ni(cod)

50 , [cod: 1, 5-シクロオクタジエン]でカップリング、もしくはジハロゲン化アリールをグリニャール化しNiCl<sub>2</sub>(dppe) [dppe: ジフェニルフォ

スフィノエタン]、 $\text{NiCl}_2(\text{dppp})$  [ $\text{dppp}$  : ジフェニルフォスフィノプロパン]、などのNi錯体などを用いてクロスカップリングする方法、(2)アントラキノン、ベンゾキノン、フェニルアンズロンもしくはピアントロンとグリニャール化したアリールもしくはリチオ化したアリールとの反応および還元によりクロスカップリングする方法、等により得られる。

【0062】このようにして得られた化合物は、元素分析、質量分析、赤外吸収スペクトル、 $^1\text{H}$ または $^{13}\text{C}$ 核磁気共鳴吸収(NMR)スペクトルなどによって同定することができ

【0063】本発明のフェニルアントラセン誘導体は、400~2000程度、さらには400~1000程度の分子量をもち、200~500℃の高融点を有し、80~250℃、さらには100~250℃、よりさらには130~250℃、特に150~250℃のガラス転移温度(Tg)を示す。従って、通常の真空蒸着等により透明で室温以上でも安定なアモルファス状態の平滑で良好な膜を形成し、しかもその良好な膜の状態が長期間に渡って維持される。

【0064】本発明の有機EL素子(以下、「EL素子」ともいう。)は、少なくとも1層の有機化合物層を有し、少なくとも1層の有機化合物層が本発明の化合物を含有する。本発明の有機EL素子の構成例を図1に示す。同図に示される有機EL素子1は、基板2上に、陽極3、正孔注入輸送層4、発光層5、電子注入輸送層6、陰極7を順次有する。

【0065】発光層は、正孔および電子の注入機能、それらの輸送機能、正孔と電子の再結合により励起子を生じさせる機能を有する。正孔注入輸送層は、陽極からの正孔の注入を容易にする機能、正孔を輸送する機能および電子の輸送を妨げる機能を有し、電子注入輸送層は、陰極からの電子の注入を容易にする機能、電子を輸送する機能および正孔の輸送を妨げる機能を有するものであり、これらの層は、発光層へ注入される正孔や電子を増大・閉じ込めさせ、再結合領域を最適化させ、発光効率を改善する。電子注入輸送層および正孔注入輸送層は、発光層に用いる化合物の電子注入、電子輸送、正孔注入、正孔輸送の各機能の高さを考慮し、必要に応じて設けられる。例えば、発光層に用いる化合物の正孔注入輸送機能または電子注入輸送機能が低い場合には、正孔注入輸送層または電子注入輸送層を設けずに、発光層が正孔注入輸送層または電子注入輸送層を兼ねる構成とすることができる。また、場合によっては正孔注入輸送層および電子注入輸送層のいずれも設けなくてよい。また、正孔注入輸送層および電子注入輸送層は、それぞれにおいて、注入機能をもつ層と輸送機能をもつ層とを別個に設けてもよい。

【0066】本発明の化合物は、比較的ニュートラルな化合物なので発光層に用いることが好ましいが、正孔注

入輸送層や電子注入輸送層にも適用可能である。

【0067】また、組み合わせる発光層や電子注入輸送層や正孔注入輸送層のキャリア移動度やキャリア密度(イオン化ポテンシャル・電子親和力により決まる)を考慮しながら、膜厚をコントロールすることで、再結合領域・発光領域を自由に設計することが可能であり、発光色の設計や、両電極の干渉効果による発光輝度・発光スペクトルの制御や、発光の空間分布の制御を可能にできる。

【0068】本発明の化合物を発光層に用いる場合について説明する。発光層には本発明の化合物のほか、他の蛍光性物質を用いてもよく、他の蛍光性物質としては、例えば、特開昭63-264692号公報に開示されているような化合物、例えば、キナクリドン、ルブレン、スチリル系色素等の化合物から選択される少なくとも1種が挙げられる。このような蛍光性物質の含有量は、本発明の化合物の10モル%以下とすることが好ましい。このような化合物を適宜選択して添加することにより、発光光を長波長側にシフトすることができる。

【0069】また、発光層には、一重項酸素クエンチャーが含有されていてもよい。このようなクエンチャーとしては、ニッケル錯体や、ルブレン、ジフェニルイソベンゾフラン、三級アミン等が挙げられる。このようなクエンチャーの含有量は、本発明の化合物の10モル%以下とすることが好ましい。

【0070】本発明の化合物を発光層に用いる場合、正孔注入輸送層および電子注入輸送層には、通常の有機EL素子に用いられている各種有機化合物、例えば、特開昭63-295695号公報、特開平2-191694号公報、特開平3-792号公報等に記載されている各種有機化合物を用いることができる。例えば、正孔注入輸送層には、芳香族三級アミン、ヒドラゾン誘導体、カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、イミダゾール誘導体等を用いることができ、また、電子注入輸送層には、アルミキノリノールなどの有機金属錯体誘導体、オキサジアゾール誘導体、ビリジン誘導体、ピリミジン誘導体、キノリン誘導体、キノキサリン誘導体、ジフェニルキノロン誘導体、ペリレン誘導体、フルオレン誘導体等を用いることができる。

【0071】正孔注入輸送層を正孔注入層と正孔輸送層とに分けて設ける場合は、正孔注入輸送層用の化合物のなかから好ましい組合せを選択して用いることができる。このとき、陽極(ITO等)側からイオン化ポテンシャルの小さい化合物の層の順に積層することが好ましい。また陽極表面には薄膜性の良好な化合物を用いることが好ましい。このような積層順については、正孔注入輸送層を2層以上設けるときも同様である。このような積層順とすることによって、駆動電圧が低下し、電流リークの発生やダークスポットの発生・成長を防ぐことができる。また、素子化する場合、蒸着を用いているので

1~10 nm程度の薄い膜も、均一かつピンホールフリーとすることができるため、正孔注入層にイオン化ポテンシャルが小さく、可視部に吸収をもつような化合物を用いても、発光色の色調変化や再吸収による効率の低下を防ぐことができる。

【0072】電子注入輸送層を電子注入層と電子輸送層とに分けて設ける場合は、電子注入輸送層用の化合物のなかから好ましい組合せを選択して用いることができる。このとき、陰極側から電子親和力の値の大きい化合物の層の順に積層することが好ましい。このような積層順については電子注入輸送層を2層以上設けるときも同様である。

【0073】なお、本発明では、発光層を電子注入輸送性化合物と正孔注入輸送性化合物との混合層とすることも好ましい。そして、このような混合層に本発明の化合物を含有させる。本発明の化合物は、通常、蛍光性物質として含有されるため、より具体的には、本発明の化合物が電子注入輸送性化合物であるとき、他の正孔注入輸送性化合物をさらに添加することが好ましく、本発明の化合物が正孔注入輸送性化合物であるときは、他の電子注入輸送性化合物をさらに添加することが好ましい。上記の混合層における電子注入輸送性化合物と正孔注入輸送性化合物との混合比は、重量比で、電子注入輸送性化合物：正孔注入輸送性化合物が60：40~40：60であることが好ましく、特に50：50程度であることが好ましい。

【0074】この混合に供する電子注入輸送性化合物は、上記の電子注入輸送層用の化合物のなかから、また正孔注入輸送性化合物は、上記の正孔注入輸送層用の化合物のなかから選択して用いることができる。また、場合によっては本発明の化合物から選択して用いてもよい。さらに、混合層において、電子注入輸送性化合物、正孔注入輸送性化合物は各々1種のみ用いても2種以上を併用してもよい。また、混合層には発光強度を高めるために、本発明の化合物や他の蛍光性物質をドーピングして用いてもよい。

【0075】さらに、他の電子注入輸送性化合物および他の正孔注入輸送性化合物の混合層とし、このような混合層に本発明の化合物をドーピングして用いてもよい。

【0076】このような混合層をEL素子に適用することによって、素子の安定性が向上する。

【0077】本発明の化合物は電子注入輸送層に用いることも好ましい。この場合、発光層に用いる蛍光性物質は、本発明の化合物より長波長もしくは同程度の波長の蛍光をもつものを用いることが好ましい。例えば、上記した、発光層において本発明の化合物と併用できる蛍光性物質のなかから選択して用いることができる。また、本発明の化合物は、このような構成において、さらに発光層にも用いることができる。また、本発明の化合物は電子注入輸送層を兼ねた発光層にも用いることができ

る。

【0078】本発明の化合物は正孔注入輸送層に用いることができる。

【0079】本発明の化合物を正孔注入輸送層に用いる場合、発光層に用いる蛍光性物質は、本発明の化合物より長波長の蛍光をもつものから選択すればよく、例えば、上記した、発光層において本発明の化合物と併用される蛍光性物質の1種以上から適宜選択すればよい。このような場合、発光層にも本発明の化合物を用いることができる。

【0080】なお、上記において、他の蛍光性物質を主に発光層に用いる場合、本発明の化合物を蛍光性物質として10モル%以下添加して併用してもよい。

【0081】発光層の厚さ、正孔注入輸送層の厚さおよび電子注入輸送層の厚さは特に限定されず、形成方法によっても異なるが、通常、5~1000 nm程度、特に8~200 nmとすることが好ましい。

【0082】正孔注入輸送層の厚さおよび電子注入輸送層の厚さは、再結合・発光領域の設計によるが、発光層の厚さと同程度もしくは1/10~10倍程度とすればよい。電子もしくは正孔の、各々の注入層と輸送層を分ける場合は、注入層は1 nm以上、輸送層は20 nm以上とするのが好ましい。このときの注入層、輸送層の厚さの上限は、通常、注入層で100 nm程度、輸送層で1000 nm程度である。

【0083】陰極には、仕事関数の小さい材料、例えば、Li、Na、Mg、Al、Ag、Inあるいはこれらの1種以上を含む合金を用いることが好ましい。また、陰極は結晶粒が細かいことが好ましく、特に、アモルファス状態であることが好ましい。陰極の厚さは10~1000 nm程度とすることが好ましい。

【0084】EL素子を面発光させるためには、少なくとも一方の電極が透明ないし半透明である必要があり、上記したように陰極の材料には制限があるので、好ましくは発光光の透過率が80%以上となるように陽極の材料および厚さを決定することが好ましい。具体的には、例えば、ITO、SnO<sub>2</sub>、Ni、Au、Pt、Pd、ドーパントをドーピングしたポリピロールなどを陽極に用いることが好ましい。また、陽極の厚さは10~500 nm程度とすることが好ましい。また、素子の信頼性を向上するために駆動電圧が低いことが必要であるが、好ましいものとして10~30 Ω/□程度なしし10 Ω/□以下（通常5~10 Ω/□）のITOが挙げられる。

【0085】基板材料に特に制限はないが、図示例では基板側から発光光を取り出すため、ガラスや樹脂等の透明ないし半透明材料を用いる。また、基板に色フィルター膜や誘電体反射膜を用いて発光色をコントロールしてもよい。

【0086】なお、基板に不透明な材料を用いる場合には、図1に示される積層順序を逆にしてもよい。



【0087】次に、本発明の有機EL素子の製造方法を説明する。

【0088】陰極および陽極は、蒸着法やスパッタ法等の気相成長法により形成することが好ましい。

【0089】正孔注入輸送層、発光層および電子注入輸送層の形成には、均質な薄膜が形成できることから真空蒸着法を用いることが好ましい。真空蒸着法を用いた場合、アモルファス状態または結晶粒径が0.1 μm以下（通常0.01 μm以上）の均質な薄膜が得られる。結晶粒径が0.1 μmを超えていると、不均一な発光となり、素子の駆動電圧を高くしなければならなくなり、電荷の注入効率も著しく低下する。

【0090】真空蒸着の条件は特に限定されないが、10<sup>-4</sup> Torr以下の真空度とし、蒸着速度は0.1~1 nm/sec程度とすることが好ましい。また、真空中で連続して各層を形成することが好ましい。真空中で連続して形成すれば、各層の界面に不純物が吸着することを防げるため、高特性が得られる。また、素子の駆動電圧を低くすることができる。

【0091】これら各層の形成に真空蒸着法を用いる場合において、1層に複数の化合物を含有させる場合、化合物を入れた各ボートを個別に温度制御して水晶振動子膜厚計でモニターしながら共蒸着することが好ましい。

【0092】本発明のEL素子は、通常、直流駆動型の\*

元素分析：

	C	H
計算値/%	94.80	5.20
測定値/%	94.96	4.90

質量分析：m/e 658 (M<sup>+</sup>)

赤外吸収スペクトル：図2

NMRスペクトル：図3

示差走査熱量測定(DSC)：融点450℃、ガラス転移温度181℃

【0096】<実施例2>

化合物II-1の合成

ビス(1,5-シクロオクタジエン)ニッケル(Ni(cod)<sub>2</sub>) 0.37g (1.35 mmol)、2,2'-ビピリジン0.20g (1.28 mmol)と、1,5-\*

元素分析：

	C	H
計算値/%	94.80	5.20
測定値/%	94.60	4.97

質量分析：m/e 658 (M<sup>+</sup>)

赤外吸収スペクトル：図4

NMRスペクトル：図5

【0098】<実施例3>

化合物III-1の合成

シュレンクフラスコにアルゴン下で活性化したマグネシウム0.267g (10 mmol)に、4,4'-ジ-ヨードビフェニル2.22g (5.46 mmol)のテトラヒドロフラン(THF)溶液50mlを滴下しグリニャール化した。この反応溶液にNiCl<sub>2</sub>(dppf) 0.4g 50

\* EL素子として用いられるが、交流駆動またはパルス駆動することもできる。印加電圧は、通常、2~20V程度とされる。

【0093】

【実施例】以下、本発明の具体的実施例を比較例とともに示し、本発明をさらに詳細に説明する。

【0094】<実施例1>

化合物I-1の合成

ビス(1,5-シクロオクタジエン)ニッケル(Ni(cod)<sub>2</sub>) 0.37g (1.35 mmol)、2,2'-ビピリジン0.20g (1.28 mmol)と、1,5-シクロオクタジエン0.20mlを、N,N-ジメチルホルムアミド20mlに窒素雰囲気中で混合し、さらに2-クロロ-9,10-ジフェニルアントラセン1.00g (2.74 mmol)を加え、60℃で24時間攪拌した。この反応溶液を1N塩酸水溶液に投入し、トルエンとクロロホルムで抽出し、水洗後、硫酸マグネシウムで乾燥した。得られた生成物をアセトンで再沈し、クロロホルムより3回再結晶し、トルエンを抽出溶媒としてシリカカラム精製し、0.53gの黄白色固体を得た。得られた黄白色固体0.5gを昇華精製し、0.23gの青色蛍光をもつ黄白色固体を得た。

【0095】

※シクロオクタジエン0.20mlを、N,N-ジメチルホルムアミド20mlに窒素雰囲気中で混合し、さらに1-クロロ-9,10-ジフェニルアントラセン1.00g (2.74 mmol)を加え、60℃で24時間攪拌した。この反応溶液を1N塩酸水溶液に投入し、トルエンとクロロホルムで抽出し、水洗後、硫酸マグネシウムで乾燥した。得られた生成物をアセトンで再沈し、クロロホルムより3回再結晶し、トルエンを抽出溶媒としてシリカカラム精製し、0.20gの黄白色固体を得た。

【0097】

と2-クロロ-9,10-ジフェニルアントラセン4.00g (10 mmol)を加え、60℃で4時間還流した。この反応溶液を1N塩酸水溶液に投入しトルエンとクロロホルムで抽出し、水洗後、硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を留去後、アセトン/ジクロロメタンにより再結晶し、さらにトルエンとヘキサンを抽出溶媒としてシリカカラム精製し、2.0gの青緑色蛍光を示す黄白色固体を得た。この黄白色固体1.0gを昇華精製し、0.6gの純粋な黄白色固体を得た。

【0099】

元素分析:

	C	H
計算値/%	94.54	5.45
測定値/%	94.50	5.40

質量分析: m/e 586 (M<sup>+</sup>)

示差走査熱量測定 (DSC): 融点350℃、ガラス転移温度120℃

イオン化ポテンシャル: 5.95 eV

【0100】なお、赤外吸収スペクトル、NMRスペクトルの結果からも、上記化合物と同定した。

【0101】&lt;実施例4&gt;

化合物V-1の合成

シュレンクフラスコにアルゴン下で活性化したマグネシウム0.267g (10mmol) に、4,4'-ジ-ヨードビフェニル2.02g (4.97mmol) のTHF溶液50mlを滴下しグリニャール化した。この反応溶液をア\*

元素分析:

	C	H
計算値/%	94.80	5.20
測定値/%	94.58	5.10

質量分析: m/e 658 (M<sup>+</sup>)

なお、赤外吸収スペクトル、NMRスペクトルの結果からも、上記化合物と同定した。

【0102】&lt;実施例5&gt;

化合物VII-2の合成

シュレンクフラスコにアルゴン下で、ピアントロン1.0g (2.6mmol) をTHF50mlに溶解し、この溶液中に、4-メチルフェニルマグネシウムブロマイドのエーテル溶液 (6.0mmol) を滴下し、4時間還流した。この反応溶液を、塩化アンモニウム水溶液に投入し、トルエンとクロロホルムで抽出し、水洗後、硫酸マグネシウムで乾燥した。次にこの生成物を酢酸100mlに溶解し、沃化水素水溶液を滴下後、4時間攪拌し、二塩化スズ (SnCl<sub>2</sub>) の塩酸溶液を滴下し、さらに100℃で1時間攪拌した。その後、水を加え、クロロホルムとトルエンで抽出し、硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を留去した後、アセトン、メタノールで洗浄し、トルエンとヘキサン (1:4) を溶出溶媒としてシリカカラム精製後、トルエンより再結晶し、0.8gの白色固体を得た。

質量分析: m/e 535 (M+1)<sup>+</sup>

赤外吸収スペクトル: 図6

NMRスペクトル: 図7

示差走査熱量測定 (DSC): 融点365℃、ガラス転移温度162℃

【0103】なお、元素分析における計算値と測定値もよく一致した。

【0104】&lt;実施例6&gt;

化合物VII-1の合成

実施例5に準じて合成した。

質量分析: m/e 506 (M<sup>+</sup>)

赤外吸収スペクトル: 図8

\*ントラキノン1.04g (5mmol) のTHF溶液中に滴下し1時間攪拌した。その後フェニルマグネシウムアイオダイドのTHF溶液を滴下し、60℃で2時間還流した。反応溶液を1N塩酸水溶液に投入しトルエンとクロロホルムで抽出し、水洗後、硫酸マグネシウムで乾燥した。次に、この生成物を酢酸100mlに溶解し沃化水素水溶液を滴下後4時間攪拌した。この溶液に二塩化スズ (SnCl<sub>2</sub>) の塩酸溶液を遊離した沃素が消えるまで入れた。クロロホルムとトルエンで抽出し硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を留去後、トルエンを溶出溶媒としてシリカカラム精製した後、アセトン/トルエンより再結晶した。

NMRスペクトル: 図9

示差走査熱量測定 (DSC): 融点350℃、ガラス転移温度130℃

【0105】なお、元素分析における計算値と測定値もよく一致した。

【0106】&lt;実施例7&gt;

化合物VII-3の合成

実施例5に準じて合成した。

質量分析: m/e 619 (M+1)<sup>+</sup>

赤外吸収スペクトル: 図10

NMRスペクトル: 図11

示差走査熱量測定 (DSC): 融点411℃

【0107】なお、元素分析における計算値と測定値もよく一致した。

【0108】&lt;実施例8&gt;

化合物VII-4の合成

実施例5に準じて合成した。

質量分析: m/e 566 (M+1)<sup>+</sup>

赤外吸収スペクトル: 図12

NMRスペクトル: 図13

【0109】なお、元素分析における計算値と測定値もよく一致した。

【0110】&lt;実施例9&gt;

化合物VII-8の合成

実施例5に準じて合成した。

質量分析: m/e 658 (M<sup>+</sup>)

赤外吸収スペクトル: 図14

NMRスペクトル: 図15

示差走査熱量測定 (DSC): 融点345℃、ガラス転移温度188℃

【0111】なお、元素分析における計算値と測定値もよく一致した。